

# EUROPEAN PATENT OFFICE

## Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 10279354  
PUBLICATION DATE : 20-10-98

APPLICATION DATE : 31-03-97  
APPLICATION NUMBER : 09096447

APPLICANT : HITACHI METALS LTD;

INVENTOR : SADAMURA SHIGERU;

INT.CL. : C04B 35/49 H01L 41/107 H01L 41/187 H01L 41/24

TITLE : PIEZOELECTRIC CERAMIC MATEAL AND PIEZOELECTRIC TRANSFORMER

ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a high electromechanical coupling coefft. of a sintered body of a compsn. comprising lead titanate zirconate in which part of Pb is replaced by Sr, Ba or Ca and containing a specified amt. of Fe by forming the sintered body in such manner that its crystalline structure consists of grains having a specified average grain size and a specified or small grain size for a specified area.

SOLUTION: This piezoelectric ceramic material is a sintered body comprising  $(\text{Pb}_{1-a}\text{M}_a)(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$  [wherein M is Sr, Ba or Ca; a satisfies  $0.01 \leq a \leq 0.10$ ; x satisfies  $0.51 \leq x \leq 0.55$ ] and containing Fe by 0.05 to 1.0 wt.% calculated as  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . In the apparent crystalline structure on the cross section for observation, the average crystalline grain size is  $\leq 1 \mu\text{m}$  and  $\geq 80\%$  of the area consists of crystalline grains having  $\leq 1 \mu\text{m}$  grain size. By replacing 1 to 10 atm% of Pb atoms in the compsn. by at least one of Sr, Ba and Ga, especially by Sr, the electromechanical coupling coefft. for the transverse effect and the mechanical quality coefft. can be increased. By adding Fe, the mechanical quality factor can be further increased.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-279354

(43)公開日 平成10年(1998)10月20日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

C 0 4 B 35/49  
H 0 1 L 41/107  
41/187  
41/24

識別記号

F I

C 0 4 B 35/49  
H 0 1 L 41/08  
41/18  
41/22

B  
A  
1 0 1 D  
A

審査請求 未請求 請求項の数3 FD (全 6 頁)

(21)出願番号

特願平9-96447

(22)出願日

平成9年(1997)3月31日

(71)出願人 000005083

日立金属株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

(72)発明者 渡辺 純一

埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式会社磁性材料研究所内

(72)発明者 菊池 広実

埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式会社磁性材料研究所内

(72)発明者 定村 茂

鳥取県鳥取市南栄町70番地2号日立金属株式会社鳥取工場内

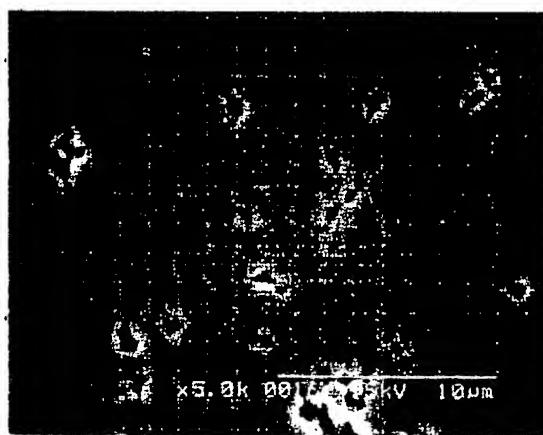
(54)【発明の名称】 壓電セラミックスおよび圧電トランス

(57)【要約】

図面代用写真

【目的】 機械的強度が高く、高い効率および昇圧比が得られる圧電セラミックスおよび圧電トランスを提供する。

【構成】  $(\text{Pb}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zr}_z\text{Ti}_{1-z})\text{O}_3$ にFeを含有する圧電セラミックス焼結体で、その平均結晶粒径が1μm以下、かつ80%以上が1μm以下の結晶粒で構成されている。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】  $(\text{Pb}_{1-x}\text{M}_x)(\text{Zr}_z\text{Ti}_{1-z})O_3$  (ただしMは、Sr、Ba、Caの少なくとも1種、かつ0.01 ≤ a ≤ 0.10、0.51 ≤ x ≤ 0.55)にFeを $\text{Fe}_2\text{O}_3$ に換算して0.05~1.0重量%含有する組成物の焼結体であって、かつ当該焼結体の断面観察像における見かけの結晶組織は、その平均結晶粒径が $1\mu\text{m}$ 以下であるとともに、その80面積%以上が $1\mu\text{m}$ 以下の結晶粒径の結晶粒で構成されていることを特徴とする圧電セラミックス。

【請求項2】  $(\text{Pb}_{1-x}\text{Sr}_x)(\text{Zr}_z\text{Ti}_{1-z})O_3$  (ただし、0.01 ≤ a ≤ 0.10、0.51 ≤ x ≤ 0.55)にFeを $\text{Fe}_2\text{O}_3$ に換算して0.05~1.0重量%含有する組成物の焼結体であって、かつ当該焼結体の断面観察像における見かけの結晶組織は、その平均結晶粒径が $1\mu\text{m}$ 以下であるとともに、その80面積%以上が $1\mu\text{m}$ 以下の結晶粒径の結晶粒で構成されていることを特徴とする圧電セラミックス。

【請求項3】 請求項1、2の何れかに記載の圧電セラミックスを積層型圧電トランスに適用したことを特徴とする圧電トランス。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、圧電セラミックスに関するものであり、また冷陰極管点灯回路用、特に小型液晶ディスプレーのバックライト点灯用のインバータ回路部品である圧電トランスに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】一般に、液晶ディスプレーにあっては液晶自体は発光しないことから液晶表示体の背面や側面に冷陰極管等の放電管を配置するバックライト方式が主流となっている。この放電管を駆動するためには、使用す

$$(V_o \cdot V_i) = A \cdot k_{31} \cdot k_{33} \cdot Q_m \cdot L \cdot T \quad (1) \text{式}$$

ここで、 $k_{31}$ ：横効果の電気機械結合係数、 $k_{33}$ ：縦効果の電気機械結合係数、 $Q_m$ ：機械的品質係数、L：圧電セラミックスの長さ、T：圧電セラミックスの厚さ、A：定数である。 $k_{31}$ 、 $k_{33}$ 、 $Q_m$ は圧電材料により決定される材料定数であり、L、Tは素子の寸法形状により決定される。

【0008】前述のバックライト用に使用される圧電トランスは数100ボルト以上の高い交流高電圧が要求されるため、高い昇圧比が必要とされる。そのためには、(1)式からわかるように圧電トランス形状の厚さTを薄くするか、長さLを大きくすることが有効であるが、実装、素子強度の面から、とりうる値には自ずと限界がある。

【0009】このような問題点を解決する方法として薄手の圧電セラミックスを積層し、駆動部側を並列接続するような圧電トランスが例えば特公昭52-45476号公報に開示されている。このような駆動部側が積層

する放電管の長さや直径にもよるが、通常、数百ボルト以上の交流の高電圧が要求される。この交流高電圧を発生させる方法として圧電トランスを用いたインバータが特開平5-114492号公報に開示されている。

【0003】圧電トランスは、巻線が不要なことから構造が非常に簡単となり、小型化、薄型化、低コスト化が可能である。この圧電トランスの構造と特徴は、例えば学文献社発行の専門誌「エレクトロセラミックス」1971年7月号の「圧電トランスの特性とその応用」に示されている。

【0004】最も一般的な圧電トランスの構成と動作を図3を用いて以下に説明する。図3に示すものは1956年に米国のC. A. Rosenが発表したローゼン型圧電トランスの説明用模式図である。斜線を施した部分は特に電極部であることを示す。

【0005】図は単板状の圧電トランスであり、図中の2は例えばチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)の圧電セラミックスである。この圧電セラミックス2の図中左半分の上下面には例えば銀焼き付けにより設けられた入力電極4、6の対を形成し、右側端面にも同様の方法で出力電極8を形成する。そして圧電セラミックス2の左半分の駆動部は厚み方向に、右半分の発電部は長さ方向にそれぞれ矢印に示すように分極処理を施す。

【0006】このように形成された圧電トランスにおいて、入力電極4、6間に交流電圧を印加するとこの圧電セラミックス2は長さ方向に強い機械振動を生じ、これにより右半分の発電部では圧電効果により電荷を生じ、出力電極8と入力電極の一方、例えば入力電極6との間に出力電圧 $V_o$ が生じる。

【0007】上記の構成の圧電トランスで得られる昇圧比( $V_o / V_i$ ) (ここで $V_i$ は、入力電圧)は、

(1)式のように表される。

$$(1) \text{式}$$

された圧電トランスの例を図4に示す。なお、斜線を施した部分は特に電極部であることを示す。ここで駆動部は、圧電セラミックス2と内部電極3が交互に積層された構造になっている。

## 【0010】

【発明が解決しようとする課題】圧電セラミックスは多結晶体であるため空孔、クラックなどの内部欠陥を含んでいる。そのため圧電セラミックスの機械的強度は、これら内部欠陥の大小および数に相関があり、内部欠陥が小さくかつ少ない程強度が強くなる。圧電セラミックスを圧電トランスとして使用する場合、入力電圧を高くしていくに従い、大振幅で振動するため振動に伴う応力により破壊したり、素子の内部損失の増加による発熱や昇圧比の低下を生じたりする。このため長時間圧電トランスを使用していると圧電トランスとしての性能が低下し、さらに破壊し易く信頼性が低いという問題があつた。

【0011】さらに、(1)式に示すように、圧電トラン用の材質としては、電気機械結合係数 $k_{31}$ 、 $k_{33}$ および機械的品質係数 $Q_H$ の大きい材料が要求される。しかし從来、抗折強度が高く、かつ $k_{31}$ 、 $k_{33}$ および $Q_H$ の大きい材料がなく、圧電トラン用材料として最適な材料がないという問題があった。

【0012】本発明は上述の課題を解決するためになされたもので、電気機械結合係数、機械的品質係数が高く、かつ機械的強度が大で、信頼性の高い圧電トラン用を提供することを目的とする。

### 【0013】

【課題を解決するための手段】上述の課題を解決するため鋭意研究の結果、発明者らは著しく構成を改善した圧電セラミックスおよびこれを適用した圧電トラン用に想到したものである。すなわち第1の発明は、 $(Pb_{1-x}M_x)(Zr_xTi_{1-x})O_3$  (ただしMは、Sr、Ba、Caの少なくとも1種、かつ $0.01 \leq x \leq 0.10$ 、 $0.51 \leq x \leq 0.55$ )にFeを $Fe_2O_3$ に換算して $0.05\sim1.0$ 重量%含有する組成物の焼結体であって、かつ当該焼結体の断面観察像における見かけの結晶組織は、その平均結晶粒径が $1\mu m$ 以下であるとともに、その80面積%以上が $1\mu m$ 以下の結晶粒径の結晶粒で構成される圧電セラミックスである。

【0014】また第2の発明は第1の発明におけるMのところを、Srとした圧電セラミックスである。

【0015】また第3の発明は第1、2の発明のいずれかに記載の圧電セラミックスを積層型圧電トラン用に適用したものである。

### 【0016】

#### 【発明の実施の形態】

(作用) 圧電セラミックスの組成中、 $(Pb_{1-x}M_x)(Zr_xTi_{1-x})O_3$ のxのところを $0.51 \leq x \leq 0.55$ の範囲とすることによって、当該組成物の焼結体は $k_{31}$ および $k_{33}$ が高く、tan $\delta$  (損失) が小さくなり、ひいては昇圧比が高く、発熱量を少なくできる。

【0017】また上記組成物中のPb原子の $1\sim10$ 原子%をSr、BaおよびCaの少なくとも1種で置換すること、とりわけSrで置換することによって $k_{31}$ および $Q_H$ をさらに高くできる。

$$k_{31} = k_p + 1 / (1 - \sigma) \quad (2) \text{式}$$

【0025】以上によって得た結果を表1に示す。表1中のNo. 1、2、4の試料は $(Pb_{1-x}M_x)(Zr_xTi_{1-x})O_3$ のxの値を変えたものである。これによると、 $0.51 \leq x \leq 0.55$ では、 $k_{31}$ の値が0.27

【0018】また上記組成物に、 $Fe_2O_3$ に換算して $0.05\sim1.0$ 重量%相当のFeを含有させることで $Q_H$ をさらに高くすることができる。

【0019】従って、上記圧電セラミックスは、高い昇圧比の圧電トラン用を得ることができるとともに、低発熱量のため高温度下における性能劣化の心配がなく高い効率を有する圧電トラン用を得ることができる。

【0020】さらに、上記圧電セラミックスは、焼結体の平均結晶粒径を $1\mu m$ 以下とし、かつ $1\mu m$ 以下の結晶粒子を80面積%以上とすれば、結晶粒子間に空孔や亀裂が発生し難く、因って抗折強度が強くなる、しかも長時間連続使用しても破壊し難い、繰り返し応力下での信頼性の高い圧電トラン用を得ることができる。

### 【0021】

【実施例】次に本発明の実施例につき、図と表を参照しながら詳細に説明する。表1は本発明の一実施例を説明するための組成、結晶組織および特性値を纏めた表である。

(実施例1) 初めに試料の作成方法について説明する。まず、各出発原料の粉末を所定量秤量し、湿式ボールミルで混合した後、これを乾燥し、解碎した後 $800^{\circ}\text{C}$ で2時間仮焼して仮焼粉を作成した。この仮焼粉をライカイ機で解碎後湿式ボールミルで粉砕し、これを乾燥させて原料粉を作成した。

【0022】さらにこの原料粉に適量の接着剤(バインダ)を加えて顆粒とし、乾式プレスにより、成形圧力 $1000\text{kg/cm}^2$ で成形し、この成形体を $1100^{\circ}\text{C}$ で例えう時間焼結して焼結体を得た。

【0023】焼結体の評価は、以下のようにして行った。まず、水中置換法によりこの焼結体の密度を求めた。さらに、圧電特性を調べるために、この焼結体から直径 $16\text{mm}$ 、厚さ $0.8\text{mm}$ の円板状試料を切り出し、上下面に銀電極を焼き付け、 $140^{\circ}\text{C}$ の絶縁油の中で、 $3\text{kV/mm}$ の分極電界を5分間印加して分極処理を行い、評価測定用試料を作成した。

【0024】なお、この円板状試料からは、径方向の電気機械結合係数 $k_p$ およびボアソン比 $\sigma$ が求まるので、次に示す(2)式から、 $k_{31}$ を算出した。

$$k_{31} = k_p + 1 / (1 - \sigma) \quad (2) \text{式}$$

$\sim 0.31$ という高い値となり、特に $x=0.52$ で最大となり良好な圧電特性が得られる。

### 【0026】

#### 【表1】

No.	a	x	Fe2O3 原料粉 の粒度 重量% $\mu\text{m}$	k <sub>31</sub>	k <sub>33</sub>	Q <sub>M</sub>	tan δ %	T <sub>c</sub> °C	平均結晶粒径 1 $\mu\text{m}$ 以下 の比 率	密度 % g/cc	抗折 強度 kg/cm <sup>2</sup>		
1	0.05	0.52	0.7	0.53	0.31	1150	960	0.25	305	0.76	84	7.81	1800
2	0.05	0.51	0.7	0.51	0.27	1100	980	0.26	310	0.75	81	7.80	1810
3	0.05	0.50	0.7	0.52	0.23	1070	1020	0.27	310	0.73	88	7.81	1830
4	0.05	0.55	0.7	0.53	0.28	670	970	0.31	295	0.78	79	7.80	1780
5	0.05	0.56	0.7	0.54	0.23	530	720	0.45	290	0.79	85	7.81	1740
6	0.01	0.52	0.7	0.53	0.30	760	1010	0.29	345	0.69	84	7.83	1840
7	0.09	0.52	0.7	0.52	0.25	1340	940	0.31	260	0.78	80	7.78	1730
8	0.11	0.52	0.7	0.54	0.23	1580	880	0.42	235	0.81	75	7.75	1680
9	0.05	0.52	0	0.53	0.32	710	520	0.31	310	0.77	80	7.84	1810
10	0.05	0.52	0.1	0.52	0.32	820	880	0.22	310	0.78	81	7.83	1820
11	0.05	0.52	0.3	0.52	0.31	1075	960	0.24	305	0.76	82	7.82	1810
12	0.05	0.52	0.9	0.53	0.31	1210	920	0.38	305	0.79	83	7.80	1760
13	0.05	0.52	1.1	0.52	0.29	1280	820	0.43	300	0.78	77	7.65	1370
14	0.05	0.52	0.7	1.12	0.30	1100	700	0.41	305	1.80	21	7.78	1200
15	0.05	0.52	0.7	0.30	0.31	1140	820	0.23	305	0.56	95	7.84	2100
16	0.05	0.52	0.7	0.3+	0.29	1080	930	0.45	305	0.88	72	7.81	1380
				1.12									

【0027】表1中のNo. 6、7の試料は、Pbの一部をSrに置換した試料の評価結果である。Sr置換量が1.0および9.0原子%、すなわちa=0.01および0.09の場合、k<sub>31</sub>はそれぞれ0.3、0.25となり、良好な圧電特性を得た。

【0028】さらにFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加量を変えた試料の評価結果をNo. 10、11、12に示す。この結果からFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加量が0.1、0.3、0.9重量%の各場合にQ<sub>M</sub>がそれぞれ880、960、920と高く、良好な圧電特性を示した。

【0029】(Pb<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>)<sub>(Zr<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)</sub>O<sub>3</sub>のMをSrとし、a=0.05、x=0.52、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加量を0.7重量%とし、仮焼粉のボールミル粉碎時間を1.2時間、9.6時間とし、その他の工程条件は前記方法と同様として、粒度がそれぞれ1.12  $\mu\text{m}$ と0.3  $\mu\text{m}$ である原料粉を得、これを使用して結晶粒径の大きさが異なる焼結体を作成した。

【0030】表1のNo. 15は、上記原料粉の粒度が0.3  $\mu\text{m}$ であるものを焼結して得られた圧電セラミックスである。結晶粒径の大きさおよび分布と強度について示す。図1は表1のNo. 15の組織を示すSEM写真である。図に示す様に圧電セラミックスは、結晶の集合体である結晶粒からできている。なお、図に示す組織は、圧電セラミックスの破面を鏡面研磨し、塩酸でエッティングを施して結晶粒子を見易くしたものである。さらにこのSEM写真から画像処理装置を用いて結晶粒径を測定し、統計処理することで平均結晶粒径と粒径の分布を求めた。

【0031】その結果、本実施例では、平均結晶粒径は

0.56  $\mu\text{m}$ で、結晶粒径1  $\mu\text{m}$ 以下の結晶粒子は95面積%であった。さらに、三点曲げ強度試験により抗折強度を求めるとき2100 kg/cm<sup>2</sup>であり、高い抗折強度が得られた。

【0032】(比較例1) 表1中No. 3および5は、比較例としてxの値が0.51とx=0.55の範囲外にある時の圧電特性を示す。No. 3に示すx=0.5では、k<sub>31</sub>が0.23と低く、x=0.56ではk<sub>31</sub>が0.23かつtan δが0.45%と高い値を示し圧電特性が不良となっている。

【0033】次にPbをSrで置換した時の比較例をNo. 8に示す。Sr置換量aがa=0.11では、k<sub>31</sub>が0.23、Q<sub>M</sub>が880と低く、一方、tan δは0.42%と高く圧電特性が不良となっている。

【0034】Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>含有量を変えた時の比較例をNo. 9、13に示す。No. 9で含有量の重量%の時、Q<sub>M</sub>が520と低く、No. 13では密度が7.65 g/ccと低く、抗折強度も低下しているので好ましくない。

【0035】表1のNo. 14に原料粉の粒度が1.12  $\mu\text{m}$ のものを使用して得た焼結体の平均結晶粒径、1  $\mu\text{m}$ 以下の結晶粒子の分布および抗折強度を示す。この結果から、平均結晶粒径が1  $\mu\text{m}$ 以上であると密度が低くかつ抗折強度も低い。

【0036】また、No. 16に示すように、原料粉の粒度が0.3  $\mu\text{m}$ と1.12  $\mu\text{m}$ のものを等量混合した原料粉を用い、これを焼結して得られた圧電セラミックスは、平均結晶粒径が1  $\mu\text{m}$ 以下である一方、1  $\mu\text{m}$ 以下の結晶粒は80面積%以下である。図2にNo. 16

の焼結体の組織のSEM写真を示す。評価の結果は、実施例に比べ抗折強度が低かった。

【0037】(実施例2) 本発明で得られた圧電セラミックスからなる圧電トランスの特性について説明する。本実施例では、図4に示した積層体からなる圧電トランスを作成し、特性を評価した。この圧電トランスは、圧電セラミックス2と内部電極3が交互に20層程積層された駆動部の構造となっている。

【0038】圧電トランス作成の詳細について以下に説明する。(Pb<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>)<sub>(Zr<sub>y</sub>Ti<sub>1-y</sub>)O<sub>3</sub>}のMをSrとし、x=0.05、y=0.52、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加量を0.7重量%とし、仮焼粉を36時間ボールミル粉碎して得られた粒度が0.53μmの原料粉に有機溶媒を添加してスラリー状とし、さらにこれをシート成形機</sub>

(ドクターブレード法)でシート化して、厚さ約100μmのシートを作成した。

【0039】次に、このシートに内部電極3を印刷形成し積層後所定形状に切断したのち焼結して25×8×(厚さ)1.6mmの焼結体を得た。焼結体には、図4に示すように駆動部に入力電極4と発電部に出力電極8を、銀を800°Cで焼き付けて形成し、さらに実施例1と同様にして、駆動部および発電部を分極した。

【0040】以上のようにして得られた圧電トランスの特性を表2に示す。本発明の圧電トランスは、抗折強度、効率および昇圧比が高く、発熱量が少ない。

【0041】

【表2】

	平均結晶粒径 (μm)	1μm以下の結晶の 分布 (%)	抗折強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	効率 (%)	昇圧比	発熱量△T (°C)
実施例2	0.76	84	1800	93	65	5
比較例2	1.80	21	1200	89	59	20

【0042】(比較例2) 実施例2に示したのと同様の組成で、仮焼粉の粉碎時間を12時間と短くすることで、粒度が1.12μmの原料粉を得、これを用いて、以下実施例2と同様の方法で作成した。焼結体の平均結晶粒径が1.8μm、1μm以下の結晶粒子が21面積%である圧電トランスの特性を比較例2として表2に示す。

【0043】この圧電トランスは、実施例2に較べて抗折強度、効率、昇圧比が低く、発熱量が多いことが解る。

【0044】(実施例3) 実施例1、実施例2におけるSrのところを、Srの全量を100原子%としたときの比率で、全量Baに置換した試料、全量Caに置換した試料、Sr40原子%Ba60原子%に置換した試料、Sr40原子%Ca60原子%に置換した試料、Ba50原子%Ca50原子%に置換した試料、およびSr50原子%Ba30原子%Ca20原子%に置換した試料をそれぞれ作成した。

【0045】実施例1、実施例2の場合と同様の方法と

手順で評価および確認したところ、いずれの試料においても、実施例1、実施例2の場合とはほぼ同様の結果を得た。

【0046】

【発明の効果】以上説明したように本発明によれば、抗折強度、効率および昇圧比が高く、発熱量が少なく信頼性の高い圧電トランスを提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例に係る結晶組織の顕微鏡写真である。

【図2】第1の比較例に係る結晶組織の顕微鏡写真である。

【図3】ローゼン型圧電トランスの構造を説明するための斜視図である。

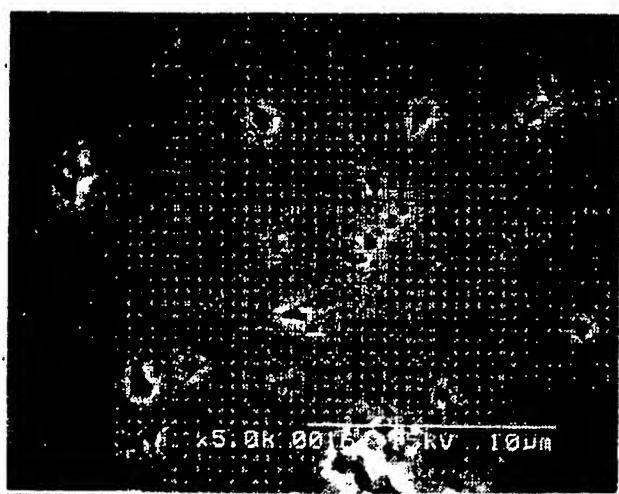
【図4】積層型圧電トランスの構造を説明するための斜視図である。

【符号の説明】

2 圧電セラミックス、3 内部電極、4、6 入力電極、8 出力電極、10 入力電源

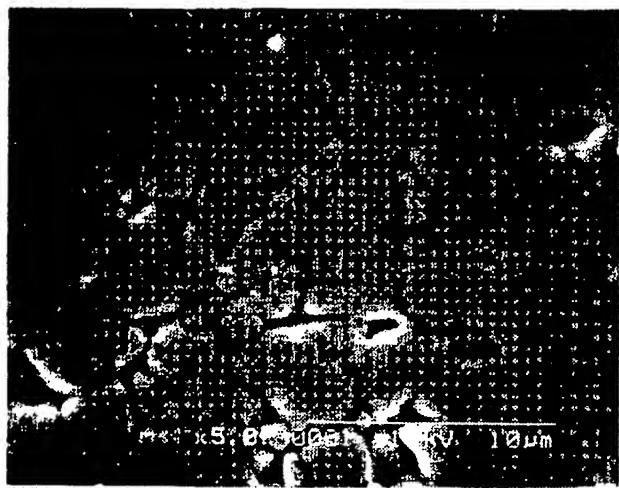
【図1】

顕微鏡写真

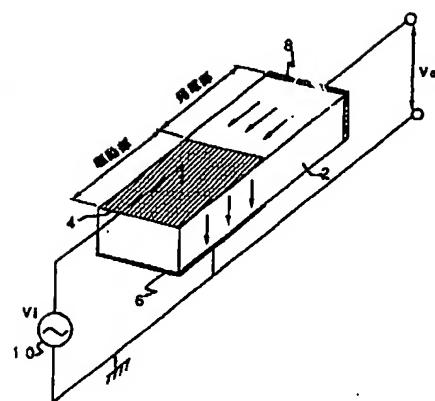


【図2】

顕微鏡写真



【図3】



【図4】

